

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003年2月13日 (13.02.2003)

PCT

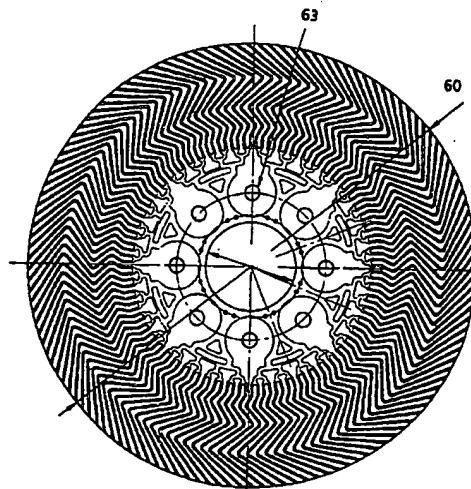
(10) 国際公開番号
WO 03/012903 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/12
(21) 国際出願番号: PCT/JP02/07752
(22) 国際出願日: 2002年7月30日 (30.07.2002)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願2001-232029 2001年7月31日 (31.07.2001) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友精密工業株式会社 (SUMITOMO PRECISION PRODUCTS CO., LTD) [JP/JP]; 〒660-0891 兵庫県 尼崎市 扶桑町1-10 Hyogo (JP).
(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 折島 寛 (ORISHIMA, Hiroshi) [JP/JP]; 〒660-0891 兵庫県 尼崎市 扶桑町1-10 住友精密工業株式会社内 Hyogo (JP). 平
(74) 代理人: 池条 重信 (IKEJYO, Shigenobu); 〒541-0044 大阪府 大阪市 中央区伏見町3丁目3-3 芝川ビル Osaka (JP).
(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池



(57) Abstract: A fuel cell capable of providing an SOFC formed so that a thermal cycle resistance is difficult to occur by uniformizing the flow and distribution of air and fuel gas in cells, wherein, when a gas passage hole part having a center through-hole for gas passage provided at the axial center part of a substrate and having a plurality of peripheral through-holes for gas passage disposed symmetrically with respect to the center through-hole is formed, stacked cell substrates can be supported and tightened by the gas passage hole part at the center part, the flows of the fuel gas and oxidizer gas can be optimized, gas distributions can be uniformized, particularly, temperature distributions can be uniformized in radial direction, and a thermal stress due to thermal expansion less occurs, and when a gas separate plate is formed by forming a gas passage pattern by etching both surfaces of a metal substrate, the number of stacked component parts can be reduced and the size and weight of the SOFC can be reduced.

[続葉有]



(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ
特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR,
GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI 特
許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(57) 要約:

この発明は、セルの空気及び燃料のガスの流れや分布を均一にして
サーマルサイクル耐性が生じ難い構成からなるSOFCの提供を目的
とし、基板中央部に板の軸中心にガス通路用の中心貫通孔を有しかつ
これを中心として対称位置に複数のガス通路用の周囲貫通孔を配置し
たガス通路孔部を形成すると、積層した各セル基板などを中央部のガ
ス通路孔部で支持、締め付けが可能で、燃料ガス及び酸化剤ガスの各
ガス流れの最適化を図りかつガス分布を各々均一にでき、特に温度分
布が半径方向に均一となり、熱膨張に伴う熱応力等の発生が少なく、
さらに金属基板の両面にエッチングでガス通路パターンを形成してガ
スセパレータ板となすと、積層構成部品が少なく、小型軽量のSOFC
を提供できる。

明 細 書

燃料電池

技術分野

この発明は、固体酸化物燃料電池(Solid Oxide Fuel Cells、以下SOFCと略記する)の新規な構成に係り、ガス通路孔部を基板の中心部に設ける構成によって、セル構成板と金属製ガスセパレータ板を極めて薄く形成でき、例えば積層したセル構成板のピッチを2mm以下となし、また基板の中央のガス通路孔部で積層した基板全体を締結して高温作動時に生じるサーマルサイクル耐性を高めることが可能で、特に金属板の両面にエッチングでガス通路の形成をしたガスセパレータ板を用いることで、部品点数が少なく小型、軽量化が可能で安価に提供できる燃料電池に関する。

背景技術

今日、実用化されているSOFCの構成に、燃料極としてニッケルとイットリア安定化ジルコニアとのサーメット多孔体、固定電解質としてイットリア安定化ジルコニア、空気極としてランタンマンガナイト、インターコネクト材としてランタクロマイトを用い、一端を閉塞した円筒型のセルとして、これを多数個束ねるようにしてスタックユニットを形成する、いわゆる円筒型SOFCがある。

また、板状の多孔体からなる燃料極、電解質、多孔体からなる酸素極を順次積層したセルを、緻密体のインターコネクト板で挟む構成となして、これを積層スタック配置する、いわゆる平板型SOFCが実用化されている。

燃料電池発電の基本構成は、上記のごとく燃料の改質、電池本体、電池から発生する直流を交流に変換するインバータからなるが、SOFCは、燃料として水素(H₂)の他にメタン(CH₄)などを燃料として取り入れることができ、電池部

でも燃料ガスの改質(内部改質)が可能であるとされている。すなわち、電池で反応した残りの未燃ガスは燃焼させ、その燃焼熱を改質反応(吸熱反応)に利用することが可能である。

SOFCは、熱の利用効率が高いことにより、50%以上の発電効率が期待でき、また、電池作動温度が1000℃と高温であることから、その排熱を蒸気回収器により高温蒸気を回収するコージェネレーションシステムへの適用が期待できると考えられている。

セルは、耐熱性を考慮して一般に固体セラミックスに形成され、また発電効率を図るためセルを束ねたり、スタック配置するため、各部材間の温度差や熱膨張係数の差異などに起因する割れに対する対策が求められている。

前記平板型SOFCは、セル密度を高くできるが、積層体構造のため、セルの各部の熱膨張率差や平面方向の温度分布のばらつきを少なくして、サーマルサイクル耐性を向上させるかが重要であって、基本的にサーマルサイクル耐性に劣る問題がある。

円筒型SOFCは、セル上端だけ固定する構成を採用すると、サーマルサイクル耐性に対する円筒長手方向の膨張収縮に関して信頼性が高い特徴を有する。しかし、円筒型セルを多数束ねて配置する構造、並びに空気や燃料を効率よく流れるようにした構造は複雑で、空間利用効率が低くスペースを取り、セラミックス材の電気伝導が劣ることから電力出力が低くなり、電気接続もニッケルフェルトを挟むなどの特別の配慮を行う必要がある。

発明の開示

この発明は、セルのガス配管、通路系統を極めて簡素にできる基本構成を目的としている。また、この発明は、発電効率を大きく向上させるため、未燃ガスをできるだけ減少させるためにスタック構造を有するSOFCを提案することを目的としている。

また、この発明は、部品点数が少なく軽量、コンパクトで安価に製造できる構成からなるSOFCを提案することを目的としている。

さらに、この発明は、セルの空気及び燃料のガスの流れや分布を均一にしてサーマルサイクル耐性が生じ難い構成からなるSOFCを提案することを目的としている。

発明者らは、SOFCにおいて、空気(酸化剤)ガス及び水素(燃料)ガスの流れや分布を均一にできる構成について種々検討した結果、ディスク基板の中央から放射状にガス通路を設けること、そのためにディスク基板の中央に貫通孔を設けてガスの導入出部を集中させることに着目したところ、基板中央部に板の軸中心にガス通路用の中心貫通孔を有しかつこれを中心として対称位置に複数のガス通路用の周囲貫通孔を配置したガス通路孔部を形成すると、積層した各セル基板などを中央部のガス通路孔部で支持、締め付けが可能で、燃料ガス及び酸化剤ガスの各ガス流れの最適化を図りかつガス分布を各々均一にでき、特に温度分布が半径方向に均一となり、熱膨張に伴う熱応力等の発生が少なく、サーマルストレスが発生し難い構成であることを知見した。

また、発明者らは、前記中心貫通孔とこれを中心として対称位置に複数の周囲貫通孔を配置したガス通路孔部は、前述の積層したスタックユニットの中央部での支持、締め付け用にシャフトを挿通配置することが可能である他、該シャフトを利用したり、ヒートパイプや二重管等を用いてガスの加熱や排熱処理を行うなどの熱交換手段を適宜配置できることを知見した。

また、発明者らは、基板中央部に前記ガス通路孔部を形成することによって、固体電解質基板の軸中心部のガス通路孔部の外周側の各基板主面に燃料側電極層と空気側電極層をそれぞれ成膜した構成のセル構成板を採用でき、セル構成板を薄板化できるため、金属製の薄板のガスセパレータ板とを適宜積層配置することで、前記セルのスタックを中央部で支持、締め付けできることと相まって極めて軽量、コンパクトな燃料電池を構成できることを知見した。

また、発明者らは、ガスセパレータ板には、ガス通路孔部の外周側の各基板の片面又は両主面に燃料通路又は空気通路パターンがそれぞれ形成された構成を採用できること、この通路パターンは、板の主面に金属又は合金材のメッシュ部材あるいは打ち抜き又はエッチング部材を配置して容易に形成でき、また、金属又は合金板を用いてその表面をエッチングすることで容易に通路パターンを形成でき、前記の固体電解質基板の両面に電極を成膜したセル構成板とともに薄板化が可能で、例えばセル構成板とガスセパレータ板が交互に積層された構成で、その積層ピッチを2mm以下、1mm程度にもでき、極めて軽量、コンパクトな燃料電池を構成できることを知見した。

さらに、発明者らは、上述の薄板の主面に電極層やガス通路パターンを形成した構成を採用することで、ガスセパレータ板はインターコネクターとして2つのガス通路形状を各々のガス組成と流量に合わせて別々に設計して形成することが可能となること、ガスセパレータ板の両面にエッチングにて形成するかあるいはメッシュ部材、エッチング部材を配置してガス通路の精密なパターン形成できることから、ガス流れの最適化による電池性能の向上を図ることができ、また金属を使用することで集電能力が高く発電ロスが少ない構成を実現できることを知見し、この発明を完成した。

すなわち、この発明は、中心軸と同心配置の中心貫通孔とその周囲に設ける複数個の周囲貫通孔とから形成される通路孔部を円板中心部に有したセル構成板と、前記と同様構成の通路孔部を円板中心部に有してその外周側主面にガス通路を有するガスセパレータ板とを積層した積層体であり、各貫通孔のいずれか又は全てを燃料又は酸化剤のガス通路となし、かつ通路孔部に形成するガス通路パターンにより積層板間のガス通路とを接続又は遮断した構成からなることを特徴とする燃料電池である。

また、発明者らは、上記構成の燃料電池において、中心貫通孔と周囲貫通孔のうち少なくとも1孔を積層体の締結用シャフトの挿通用孔として専用使用また

はガス通路と兼用使用する構成を採用すると、薄円板を多数積層したスタック構造の燃料電池、すなわち円柱状積層体の軸心部で支持することから、熱バランスかつサーマルサイクル耐性に優れることを知見した。

また、発明者らは、上記構成の燃料電池において、燃料ガスと酸化剤ガスのガス流に、中央の通路孔部から積層板間の放射方向の反応用ガス通路を経て積層体外周部へ放出されるフローアウト、又は逆に積層体外周部から積層板間の反応用ガス通路を経て中央の通路孔部へ導入されるフローインするオープンガス流構成、あるいは中央の通路孔部から積層板間の反応用のガス通路を経て積層体外周側から再度中央の通路孔部へ戻るクローズドガス流構成を採用することが可能であること、すなわち燃料ガスと酸化剤ガスが共にフローアウトのオープンガス流かクローズドガス流である構成、あるいは燃料ガスと酸化剤ガスのガス流れが相互に異なってオープンガス流(フローアウト又はフローイン)かクローズドガス流のいずれかである構成を採用でき、発電効率の向上、構造の簡素化、ガス回収の高効率化等の用途や機能の追求に応じた種々構成の燃料電池を提供できることを知見した。

図面の説明

図1Aはこの発明によるセル構成板の正面説明図、図1Bは側面説明図である。

図2Aはこの発明によるガスセパレータ板の正面説明図、図2Bはその裏面側説明図である。

図3は、この発明によるセル構成板とガスセパレータ板の積層構成を示す分解説明図である。

図4は、この発明によるセル構成板とガスセパレータ板の他の積層構成を示す分解説明図である。

図5Aはこの発明による他のガスセパレータ板の正面説明図、図5Bはその裏面側説明図である。

図6Aはこの発明による他のガスセパレータ板の正面説明図、図6Bはその裏面側説明図である。

図7Aはこの発明による他のガスセパレータ板の正面説明図、図7Bはその裏面側説明図である。

図8はこの発明による他のガスセパレータ板の正面説明図である。

発明を実施するための最良の形態

この発明は、薄板状のセル構成板とガスセパレータ板とを積層して形成した燃料電池の構成、特に反応ガスの流れは基本的に各薄板の主面に沿って中央部から放射状に外周部へと流れるか、又は外周部から再度中央部に戻るように、あるいは外周部から中央部へと流れるガス通路を設け、酸化剤ガス及び燃料ガスの供給通路と分配のための通路を全て各薄板の中心部に貫通孔を設けて形成したもので、積層した際に積層方向の貫通孔にガスの供給通路が形成される燃料電池の構成を特徴としている。

図1に示すセル構成板1は、ここでは薄円板からなる固体電解質基板2の軸中心に燃料ガス通路用の中心貫通孔3を有し、かつこれを中心として対称位置に複数の酸化剤ガス通路用、ここでは4個の周囲貫通孔4a~4dを配置したガス通路孔部5を形成してある。すなわち、ガス通路孔部5は、軸中心にある1つの中心貫通孔3と、その周囲に軸対称に配置された2つ以上の周囲貫通孔4により構成される。

また、セル構成板1は、ここでは固体電解質基板2の両主面の全面に、それぞれ燃料側電極層6と酸化剤側電極層7を成膜してある。

図2にガスセパレータ板10を示すが、上記のガスセパレータ板10と同様にここでは薄円板からなる金属基板11の軸中心に燃料ガス通路用の中心貫通孔12を

有し、これを中心として対称位置に4個の酸化剤ガス通路用の周囲貫通孔13a~13dを配置したガス通路孔部14を形成してある。

また、ガスセパレータ板10は、その主面にガス通路パターンを形成してあるが、図2Aに示す例は、酸化剤ガス用パターンであり、中心貫通孔12と周囲貫通孔13a~13dとの間のガス通路孔部14に凸部15を形成してあり、また周囲貫通孔13a~13dの外周側に放射状に小突起16を形成し、セル構成板1と積層した際に中心貫通孔12は前記凸部15に外周部を閉塞されるため、セル構成板1とガスセパレータ板10との間には中心貫通孔12から燃料ガスは供給されない。

しかし、周囲貫通孔13a~13dの周囲は、小突起16が間隔を置いて配置されるために、同孔より酸化剤ガスがセル構成板1とガスセパレータ板10との間に供給されて分散することとなる。

また、図2Bに示す例は、ガスセパレータ板10の燃料ガス用通路パターンであり、周囲貫通孔13a~13dの周囲に凸部17a~17dを形成してあり、また周囲貫通孔13a~13dの外周側に同心円状多数の円弧状凸部18と放射状凸部19とを形成して、ガス通路孔部14から放射方向にかつ蛇行するガス通路パターンを設けてある。従って、セル構成板1と積層した際に周囲貫通孔13a~13dは前記凸部17に外周部を閉塞されるため、セル構成板1とガスセパレータ板10との間に酸化剤ガスが進入することなく、中心貫通孔12から燃料ガスが供給、分散されることになる。

図2に示すガスセパレータ板10は、ステンレス鋼のように金属又は合金材より構成することで、前述のガス通路パターンを構成する各種の凸部15,17a~17d,18,19や小突起16を残すように所要部をマスキングして行うエッチング処理にて容易にかつ精密に形成することが可能である。

このエッチング処理にて前記の蛇行する燃料ガス用通路内に集電用突起部を設けることができる。ガス流れに影響を与えないように所要間隔で針を配置す

るように、例えば1mm以下の幅又は径の突起や条を3mm以下のピッチで製作できる。

ガスセパレータ板10の主面に設けるガス通路パターンは、ステンレス鋼薄板の片面に燃料ガス用通路パターンあるいは酸化剤ガス用通路パターンのいずれかを設けることもでき、両面にそれぞれ燃料ガス用と酸化剤ガス用ガス通路パターンを設けることができる。

ガスセパレータ板には、インターコネクト材として使用可能な公知の金属材料が適宜選定でき、耐熱性や耐食性、さらには他部材との熱膨張係数の整合性を考慮すると、フェライト系合金、オーステナイト系合金、Fe-Cr-W系合金材料が好ましい。例えばフェライト系合金としてはSUS430など、オーステナイト系合金としてはSUS310などがある。また、Fe-18Cr-7W系等に代表されるFe-Cr-W系合金材料なども採用できる。

また、ガスセパレータ板表面には、各種コーティング材を設けることが可能で、例えば、酸化剤ガス側に電気接触抵抗の低減とフェライト鋼からのCr蒸発防止のために、 $(La,Sr)CrO_3$ などの酸化剤側電極材料と同様材料等を用いたり、燃料ガス側に電気接触抵抗の低減のために $Ce_{0.8}Y_{0.2}O_{1.9}$ などの導電性の高い材料を用いることができる。

なお、セル構成板1は、図1Bに示すように固体電解質基板2の両面にそれぞれ燃料側電極層6又は酸化剤側電極層7を成膜した構成とすることが可能であり、固体電解質並びに燃料側電極層、酸化剤側電極層の各材料には、公知のいずれの材料も採用できる。

例えば、固体電解質には、一般的な安定化ジルコニア、燃料側電極材料には、Ni/YSZサーメット、酸化剤側電極材料には、 $(La,Sr)MnO_3$ 等、公知のいずれの材料も採用できる。

この発明において、セル構成板1とガスセパレータ板10の積層構成は、各基板のガス通路構成などに応じて種々の積層パターンが採用できる。例えば、図

3に示す積層体例は、図1に示す固体電解質基板2の両面にそれぞれ燃料側電極層6又は酸化剤側電極層7を成膜したセル構成板1と、図2に示す燃料ガス用通路パターンと酸化剤ガス用通路パターンをステンレス鋼薄板の両面に設けたガスセパレータ板10とを交互に積層配置した構成からなる。

特に、ガスセパレータ板10の両面にエッチングでガス通路を形成すると、該板10の軽量化が顕著であり、かつ積層枚数の低減も可能であるから、積層したセルスタックユニットの軽量化が達成できる。

セル構成板1とガスセパレータ板10のガス通路孔部5,14は、前述したように軸中心に燃料ガス(F)通路用の中心貫通孔3,12を有し、これを中心として対称位置に4個の酸化剤ガス(A)通路用の周囲貫通孔4a~4d、13a~13dを配置したガス通路孔部5,14を形成してある。従って、図3に示すごとくセル構成板1とガスセパレータ板10を交互に積層することによって、積層方向に各貫通孔が連通して5本のガス通路が形成される。

図3では各薄板が当接した状態を示していないが、中心貫通孔3,12による燃料ガス通路から供給される燃料ガス(F)の水素は、各ガスセパレータ板10の下側面に導入分散されてセル構成板1の上側の燃料側電極層6と接触し、また周囲貫通孔4a~4d、13a~13dによる酸化剤ガス通路から供給される酸化剤ガス(A)の空気は、各ガスセパレータ板10の上側面に導入分散されてセル構成板1の下側の酸化剤側電極層7と接触し、セル構成板1とガスセパレータ板10の外周側に排出される。

図4に示す積層体例は、図3と同様構成のセル構成板1とガスセパレータ板20であるが、図4のガスセパレータ板10の両主面のガス通路は、金属基板をエッチング処理にて形成した溝により通路を構成しているのに対して、図5のガスセパレータ板20は、例えばガス通路孔部24はエッチング処理にて図2A,Bと同等に構成し、その外周側にリング状の金属メッシュ部材25を配置することで両主面にガス通路を形成している。

この場合、金属メッシュ部材25による集電能力の向上、すなわち発電ロスが少ない構成とすることができる。金属メッシュ部材には、JIS規格のステンレス鋼線、ニッケル合金線による平織り、綾織り等の構成が採用でき、線径も0.05~0.2mm程度のものから適宜選定できる。

なお、上記の金属メッシュ部材に換えて、ガス通路パターンを形成できる金属又は合金材の打ち抜き部材又はエッチング部材を用いて積層しても、同様の作用効果を奏することは言うまでもない。

図3と図4に示す積層体構成では、セル構成板1とガスセパレータ板10,20を積層して、中心貫通孔3,12,22内にシャフトを挿通して積層体の両端部に締結用ディスクを当接させ、これをシャフトにナット止めすることで、積層される板を各ガス通路孔部5,14,24で当接させて締結できるため、いわゆるスタック配置するセルを各円板の中央部で支持し、かつ締結用シャフトで締め付けて一体化でき、円板の同士の密着にてガス通路が形成されて、各ガスを中央から放射状に流すことが可能で、サーマルサイクル耐性の低減とともにガス流れを均等化できる。

この発明において、締結用シャフトを挿通する孔は、上記の例のように中心貫通孔のみの場合のほか、中心貫通孔と周囲貫通孔の一部又は全部を用いる場合、周囲貫通孔の一部又は全部を用いる場合など、種々のレイアウトが採用でき、いずれも単数又は複数のシャフトを軸対称配置して積層体を締結する構成が採用できる。

中心貫通孔と周囲貫通孔はガスの供給又は排出通路となるため、複数の締結用シャフトを所要の貫通孔内に挿通すると、ガス種により熱を受ける場合があり、各締結用シャフトへの入熱等が均等となるように通路とガス種を適宜選定するとよい。また、この締結用シャフトをバルクやヒートパイプの熱伝導体として、あるいは二重管などを利用して、セルスタックユニットからの熱放出や

熱回収を積極的に行う構成、あるいは所定ガスの加熱、温度管理を行う構成として利用することができる。

図3と図4に示すセルをスタック配置した積層構成では、積層したセルユニットを円筒体内に入れて、前記した外周部に排出されるガスを回収する構成が採用できる。又、図示しないが、セル構成板1とガスセパレータ板10,20の外周部に貫通孔を適宜配置してかつ前述のガス通路孔部と同様に酸化剤ガスと燃料ガスをそれぞれ個別に回収する連通孔を形成することも可能である。

図3と図4に示すセルユニット例では、酸化剤ガスと燃料ガスをそれぞれ中央の通路孔部から積層板間の放射方向のガス通路を経て積層体外周部へ放出されるオープンガス流構成である。

さらに、この発明の構成では、中央の通路孔部から積層板間の放射方向のガス通路を経て積層体外周側から再度中央の通路孔部へ戻るクローズドガス流構成を採用するが可能であり、酸化剤ガスおよび燃料ガスを共にクローズドガス流とするほか、酸化剤ガスと燃料ガスにオープンガス流構成とクローズドガス流構成を組み合わせることが可能である。

図5Aに示すガスセパレータ板30は、図2Aに示す例と同様に、オープンガス流構成の酸化剤ガス用通路パターンであり、金属基板31の中心に設けた比較的内径の大きな1つの中心貫通孔32と、その周囲に配置した内径の小さな8つの周囲貫通孔33a~33hとでガス通路孔部34が形成され、周囲貫通孔33a~33hの周囲に環状凸部35a~35hを形成してあり、また周囲貫通孔33a~33hの外周側に同心円状に多数の小突起36を形成してある。

図示しないが、中心貫通孔32と8つの周囲貫通孔33a~33hとで構成されるガス通路孔部を有し、各基板主面に燃料側電極層と酸化剤側電極層をそれぞれ成膜したセル構成板と、図5Aに示すガスセパレータ板30とが当接積層された際に、周囲貫通孔33a~33hは環状凸部35a~35hで閉塞されて、中心貫通孔32はセル構成板と当該ガスセパレータ板30との間に連通して、中心貫通孔32から

供給される酸化剤ガスが環状凸部35a~35hの間を通過して放射方向に供給され、小突起36にて分散されて板外周端より放出される。

また、図5Bに示す例は、ガスセパレータ板30の他主面に形成した燃料ガス用通路パターンであり、クローズドガス流構成をなしている。すなわち、金属基板31の中心に設けた中心貫通孔32の外周全てのうち周囲貫通孔33a~33hの周囲の一部を残して略環状の凸部37を形成してあり、また周囲貫通孔13a~13dの外周側に同心円状に多数の円弧状凸部38aと放射状凸部38bとを形成して略環状の凸部37と接続形成し、金属基板外周端にリング状凸部39を形成することで、前記の同様通路孔部を有するセル構成板と当該ガスセパレータ板30とが積層された際に、特定の周囲貫通孔33b,33c,33f,33gから供給される燃料ガスが放射方向に導入されてかつ蛇行して外周側へ進み、外周部から再度蛇行して中心側へ戻り、先とは別の特定の周囲貫通孔33a,33d,33e,33hに入るガス通路パターンを形成してある。

従って、図5に示すガスセパレータ板30とセル構成板とからなるセルをスタック配置した積層体の場合は、酸化剤ガスは中心貫通孔32から供給されてオープンガス流構成でセル外周側に排出され、燃料ガスは周囲貫通孔33b,33c,33f,33gから供給されて、先とは別の特定の周囲貫通孔33a,33d,33e,33hに入るクローズドガス流構成で回収されることになる。

図6に示すガスセパレータ板40は、燃料ガス用通路パターンと酸化剤ガス用通路パターンとが共にクローズドガス流構成となるように各通路が形成されている。図6Aに示す構成は燃料ガス用通路パターンであり、金属基板41の中心に設けた比較的内径の大きな1つの中心貫通孔42と、その周囲に配置した内径の小さな6つの周囲貫通孔43a~43fとでガス通路孔部44が形成され、周囲貫通孔43aの一部を除いて周囲貫通孔43b,43cの周囲に略半円状凸部44aを形成してあり、同様に周囲貫通孔43dの一部を除いて周囲貫通孔43e,43fの周囲に略半円

状凸部44bを形成して、2つの略半円状凸部44a,44bで中心貫通孔42を挟み、直径方向の通路を形成してある。

また、金属基板41上の略半円状凸部44a,44bには、その外周側に設けた円弧状凸部45を放射状凸部46と接続形成してあり、外周部にはリング状凸部47が形成され、同様構成の貫通孔を配置したガス通路孔部を有して各基板主面に燃料側電極層と酸化剤側電極層をそれぞれ成膜したセル構成板と積層した際に、中心貫通孔42から供給される燃料ガスを、放射状凸部46、円弧状凸部45に沿って蛇行させて、再度中央部へ戻して特定の周囲貫通孔43a、43dより回収する構成である。

図6Bに示す構成は、ガスセパレータ板40の他主面に形成された酸化剤ガス用通路パターンであり、貫通孔の配置は全く同じであり、中心貫通孔42の周囲と全ての周囲貫通孔43a~43fの周囲を覆うように略円状の凸部48が形成されるが、周囲貫通孔43b,43c,43e,43fの周囲には外周側を望むように凸部が除かれて通路部が形成されている。隣接配置される周囲貫通孔43b,43c間及び周囲貫通孔43e,43f間の凸部48と円弧状凸部45とをそれぞれ放射状凸部46で接続することで、外周部リング状凸部47との間に半円主面上を蛇行する通路が形成されている。

図6Bに示す酸化剤ガス用通路パターンは、例えば周囲貫通孔43eから導入された酸化剤ガスは、放射状凸部46、円弧状凸部45に沿って蛇行させて、再度中央部へ戻して導入側に隣接する周囲貫通孔43fより排出回収される。

従って、図6に示すガスセパレータ板40とセル構成板とからなるセルをスタック配置した積層体の場合は、燃料ガスは中心貫通孔42から供給されてクローズドガス流構成で特定の周囲貫通孔43a,43dに排出され、酸化剤ガスは周囲貫通孔43b,43eから供給されて、先とは別の特定の周囲貫通孔43c,43fに入るクローズドガス流構成で回収されることになる。

また、図6Bに示すクロズドガス流構成のガス通路パターンは、これをガスセパレータ板50の両面に形成することで、酸化剤ガスと燃料ガスをそれぞれクロズドガス流となすことができる。

すなわち、図7A,Bに示すごとく、金属基板51の中心に設けた比較的内径の大きな1つの中心貫通孔52と、その周囲に配置した内径の小さな8つの周囲貫通孔53a~53hとでガス通路孔部54が形成され、中心貫通孔52と周囲貫通孔53a~53hの周囲を囲むように貫通孔と通路の接続、遮断を決定する凸部55a,55bが配置される。

図7Aでは、凸部55aは周囲貫通孔53a,53h,53d,53eの周囲には外周側を望むように凸部が除かれて通路部が形成され、隣接配置される周囲貫通孔53a,53h間及び周囲貫通孔53d,53e間の凸部55aと円弧状凸部56とをそれぞれ放射状凸部57で接続することで、外周部リング状凸部58との間に半円主面上を蛇行する通路が形成されている。

この構成によって、図7Aのパターンを酸化剤ガスのガス通路とすることが可能であり、さらに図7Bに示すごとく、通路と連通する周囲貫通孔を変えるように図7Aの凸部55aのパターンから90度ずらした凸部55bの構成とすることで、図7Aとは異なる周囲貫通孔53b,53c間及び周囲貫通孔53f,53g間で燃料ガスをそれぞれクロズドガス流となすことができる。

図8に示すガスセパレータ板60は、金属板の両面にエッチングでガス通路を形成する利点を最大限に追求したものである。すなわち供給ガス種類、ガスの圧力や流量等の違いに応じて、滞留なく均等に流れて反応効率が向上するように考慮した流路パターンでかつ十分な集電性能が発揮されるパターンを選定して金属板の両面にそれぞれエッチングしたものである。

エッチングは、このように任意パターンでかつ精密に形成でき、また微細パターンで集電性能とガス拡散性の良いインターコネクタを製造できる。

通路パターンを詳述すると、図8は酸化剤ガス用通路パターンを示すもので、基本的には図5Aに示す中央から外周部へ流れるオープンガス流構成の酸化剤ガス用通路パターンと同様の考え方で構成されている。金属基板の中心に設けた内径の大きな1つの中心貫通孔と、その周囲に配置した内径の小さな8つの周囲貫通孔63とでガス通路孔部が形成され、かつこの周囲貫通孔の周囲に略環状凸部が形成され、また図5Aに示す同心円状に多数配置した小突起を千鳥状に接続するがごとく、細いクランク状凸部を所定間隔で放射状に配置することで、中心貫通孔から細いクランク状の通路を経て外周へ至る酸化剤ガス用通路が形成され、細いクランク状凸部(溝部)の連続でいわゆるヘリーンボーン模様を呈している。

図示しないが、図8に示す金属基板の裏面側主面に燃料ガス用通路パターンを設けるが、これも同様に細いクランク状凸部を形成し、また外周部にはリターン用連続通路を設けることで、周囲貫通孔から出た燃料ガスがヘリーンボーン模様の通路を往復して又隣接の周囲貫通孔へ戻るクローズドガス流を構成することができる。

実 施 例

実施例1

図1に示す構造のセル構成板1として、直径60mm、厚み0.1mmの安定化ジルコニア(8YSZ)基板の両面に、厚み0.015mmのNi/YSZサーメット材の燃料側電極膜、厚み0.015mmの(La,Sr)CrO₃材の酸化剤側電極膜を成膜して作製した。

図2に示す構造のガスセパレータ板10として、直径60mm、厚み0.8mmのフェライト鋼基板の両面に、エッチングにて基板厚み0.2mm、通路高さ0.3mmとなるようにガス通路パターンを形成して作製した。

得られたセル構成板1とガスセパレータ板10を交互に積層して、中心貫通孔3,12,22内にシャフトを挿通して積層体の両端部にフェライト鋼製の締結用ディスクを当接させ、これをシャフトにナット止めすることで、積層される板を各ガス通路孔部5,14,24で当接させて締結して、セルが30段となるセルスタックユニットを作製し、円筒内に配置してオープンガス流構成で排気される酸化剤ガスと燃料ガスを筒内で回収するように構成した。なお、セル構成板1とガスセパレータ板10を交互に積層する際のガス通路部のシールは材料同士の当接のみでシール材は使用しなかった。

以上の構成からなる燃料電池は、構成部品としてスタックユニット自体は基本的にセル構成板とガスセパレータ板の2点であり、付随的に締結用シャフト、ディスクと外筒と極めて部品点数が少なく、厚み0.13mmのセル構成板と厚み0.8mmのガスセパレータ板を交互に積層するため、極めて小型軽量の燃料電池を得ることができた。

実施例2

図1に示す構造のセル構成板1として、直径120mm、厚み0.5mmのNi/YSZサーメット材の燃料側電極基板の一方面に、厚み0.008mmの安定化ジルコニア(8YSZ)膜を成膜し、さらに厚み0.05mmの(La,Sr)CrO₃材の酸化剤側電極膜を成膜して、総厚み0.558mmのセル構成板を作製した。

実施例1と同じ材料と構成からなるガスセパレータ板10を用いて、上記セル構成板とを交互に積層し、上述した実施例1と同じ図3のセルスタックユニットを50段構成で作製した。

なお、線膨張係数(0~1000℃、 $\alpha \times 10^{-6}$)は、Ni/YSZサーメット材が12.5、(La,Sr)MnO₃材が12.5、フェライト鋼が12.7と、各材料とも同等で、また安定化ジルコニア材は10.3であるが、これを薄膜で用いるため、線膨張係数を積層

方向に厚みとともに見ると近似性が良好となり、円板を積層して中央部で締結する基本構造と相まって、サーマルサイクル耐性に優れている。

酸化剤ガスに空気(1~10wt%の水蒸気を含む)、燃料ガスに水素を使用し、圧力500Ps、反応温度700~800℃で作動させて、発電効率を測定したところ、ガスの燃焼がそれぞれ一回であり効率としては不利なオープンガス流構成ではあるが、30~42%の発電効率を得られた。

実施例3

実施例1と同様材料、寸法で図5の構成のガスセパレータ板30、及びこれと同様のガス通路部を形成したセル構成板とを作製して、セルが30段となるセルスタックユニットを作製して円筒内に配置し、燃料ガスはクローズドガス流構成で再燃焼可能にし、酸化剤ガスはオープンガス流構成でセル外に排気されて円筒内で回収するように構成した燃料電池を作製した。なお、セル構成板1とガスセパレータ板10を交互に積層する際のガス通路部のシールは材料同士の当接のみでシール材は使用しなかった。

酸化剤ガスに空気(1~10wt%の水蒸気を含む)、燃料ガスに水素を使用し、圧力1000Ps、反応温度700~800℃で作動させて、発電効率を測定したところ、38~45%の効率が得られた。

また、作動温度状態からさらにユニット全体を200℃加熱昇温して、セルスタックユニット内のクローズドガス流構成で流れる燃料ガスの漏れの有無を観察したところ、過熱部や低温部などの異常箇所が全く見られず、漏れなどは発生していないことを確認した。

産業上の利用可能性

この発明による燃料電池は、実施例に明らかなように、ガス通路孔部を基板の中心部に設ける構成によって、セル構成板と金属製ガスセパレータ板を極めて薄く形成でき、例えば積層したセル構成板のピッチを2mm以下となし、燃料電池を著しく小型、軽量化することができ、前述のごとく部品点数が基本的に2種の基板2点と少なく、安価に提供できる。また、この発明により積層したスタックユニット全体を各基板の中央部のガス通路孔部で締結する構造から、高温作動時に生じるサーマルサイクル耐性を高めることが可能となった。

また、この発明による金属製ガスセパレータ板は、エッチングで精密にガス通路パターンや集電突起を形成できるため、オープン系、クローズド系のガス流れ、ガス圧力などを考慮してガス種に応じた最適のガス通路を設定でき、ガス圧損の低減、発電効率の向上が可能である。

特に、金属製ガスセパレータ板は、その両面に燃料ガス通路と酸化剤ガス通路パターンをそれぞれに形成できるもので、実施例に示すごとく、板厚みが1mm以下の金属板に溝深さと溝幅がそれぞれ0.5mm以下の溝を2mm以下のピッチで、各ガス流れに最適の通路パターンを各主面に形成するため、該板の軽量化が顕著であり、またガスセパレータ板の両面使用にて積層枚数の低減も可能であるから、積層したセルスタックユニットの軽量化が達成できる。

さらに、金属製ガスセパレータ板に実施例のフェライト鋼など、を用いた場合、他電極材料と線膨張係数を近似させることが可能であり、セルスタックユニット自体が中央部のガス通路孔部で締結支持されることと相まってサーマルサイクル耐性を高めることができる。

請求の範囲

1. 中心軸と同心配置の中心貫通孔とその周囲に設ける複数個の周囲貫通孔とから形成される通路孔部を円板中心部に有したセル構成板と、前記と同様構成の通路孔部を円板中心部に有してその外周側主面に反応用ガス通路を有するガスセパレータ板とを積層した積層体であり、各貫通孔のいずれか又は全てを燃料又は酸化剤ガスのガス通路となし、かつ通路孔部に形成するガス通路パターンにより積層板間の反応用ガス通路とを接続又は遮断した構成からなる燃料電池。
2. 中心貫通孔と周囲貫通孔のうち少なくとも1孔を積層体の締結用シャフトの挿通用孔として専用使用またはガス通路と兼用使用する請求項1に記載の燃料電池。
3. 中心貫通孔と周囲貫通孔のうち少なくとも1孔に熱交換手段を配置する請求項1に記載の燃料電池。
4. 燃料ガス及び酸化剤ガスが、中央の通路孔部から積層板間の反応用ガス通路を経て積層体外周部へ放出されるオープンガス流構成の請求項1に記載の燃料電池。
5. 燃料ガス及び酸化剤ガスが、中央の通路孔部から積層板間の放射方向の反応用ガス通路を経て積層体外周側から再度中央の通路孔部へ戻るクローズドガス流構成の請求項1に記載の燃料電池。
6. 燃料ガスと酸化剤ガスのいずれか一方が、中央の通路孔部から積層板間の反応用ガス通路を経て積層体外周部へ放出されるオープンガス流構成であり、前記の残る他方が、中央の通路孔部から積層板間の放射方向の反応用ガス通路を経て積層体外周側から再度中央の通路孔部へ戻るクローズドガス流構成である請求項1に記載の燃料電池。

7. 燃料ガスと酸化剤ガスのいずれか一方が、積層体外周部から積層板間の反应用ガス通路を経て中央の通路孔部へ導入されるフローインガス流構成であり、前記の残る他方が、中央の通路孔部から積層板間の放射方向の反应用ガス通路を経て積層体外周側から再度中央の通路孔部へ戻るクローズドガス流構成である請求項1に記載の燃料電池。
8. セル構成板が、燃料側電極基板、固体電解質基板、酸化剤側電極基板の順に積層した積層基板からなり、該基板の軸中心部に通路孔部を形成した請求項1に記載の燃料電池。
9. セル構成板が、燃料側電極層、固体電解質層、酸化剤側電極層の順に、前記のいずれかの材料基板の両面又は片面に各材料層を成膜して積層基板とした請求項1に記載の燃料電池。
10. ガスセパレータ板は、通路孔部の外周側の各片方主面に反应用の燃料ガス通路又は酸化剤ガス通路パターンのいずれかを配置形成するか、あるいは両方主面に反应用の燃料ガス通路と酸化剤ガス通路パターンをそれぞれ配置形成した請求項1に記載の燃料電池。
11. ガスセパレータ板が金属又は合金材からなり、反应用ガス通路パターンが主面にエッチングで形成された請求項10に記載の燃料電池。
12. ガスセパレータ板が金属又は合金材からなり、反应用ガス通路パターンを、金属又は合金材のメッシュ部材を配置して形成した請求項10に記載の燃料電池。
13. ガスセパレータ板が金属又は合金材からなり、反应用ガス通路パターンを、金属又は合金材の打ち抜き又はエッチング部材を配置して形成した請求項10に記載の燃料電池。

図1A

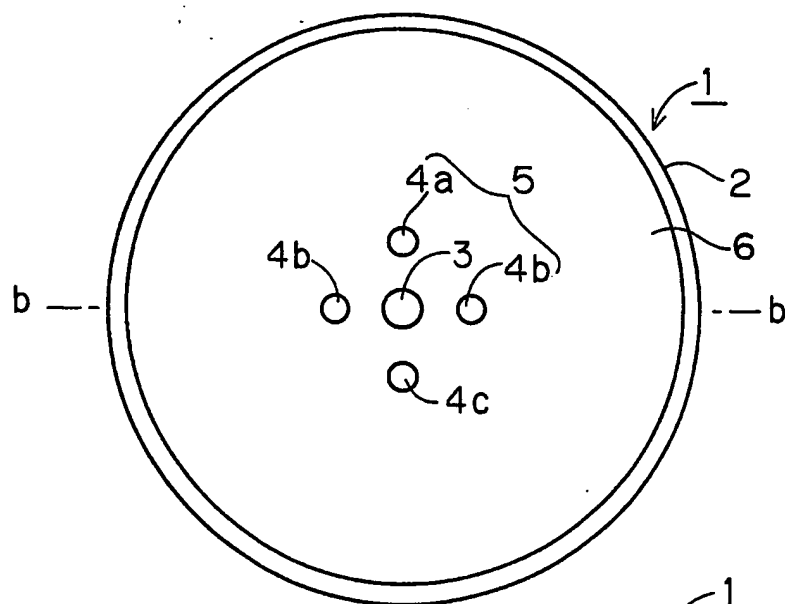


図1B



図2A

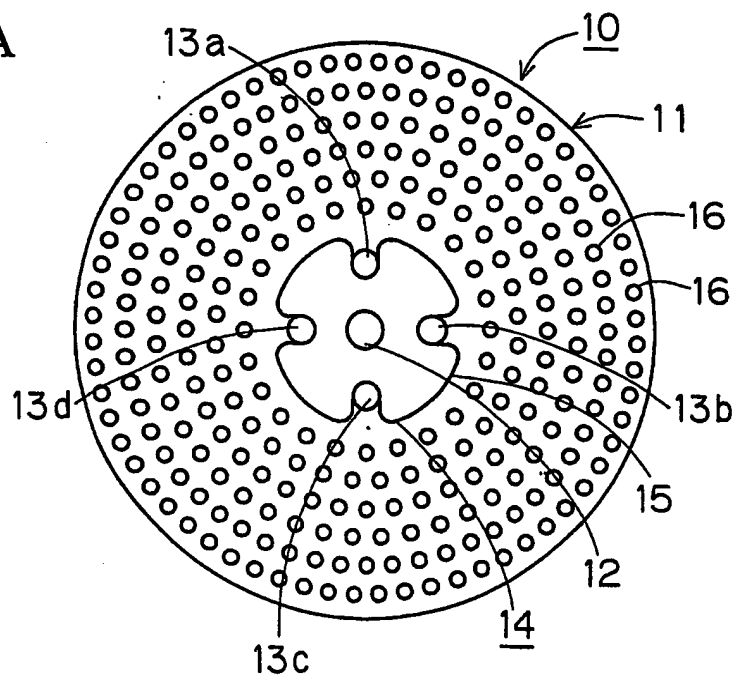


図2B

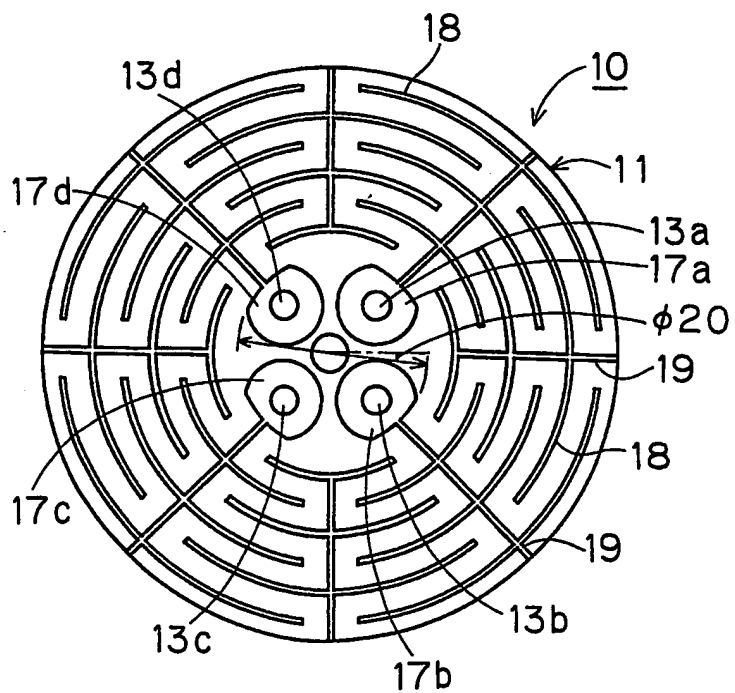


図3

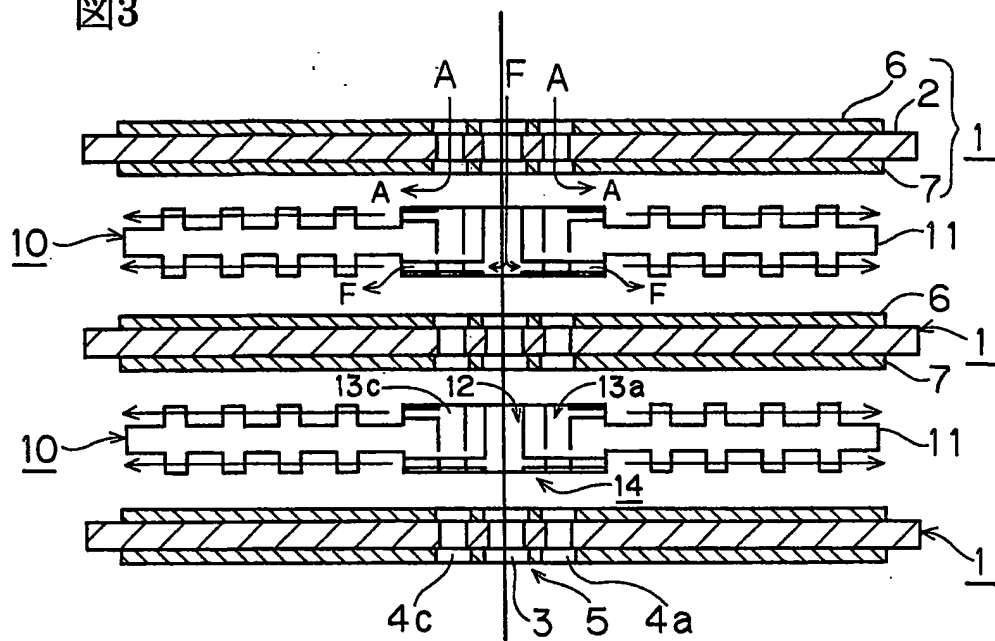


図4

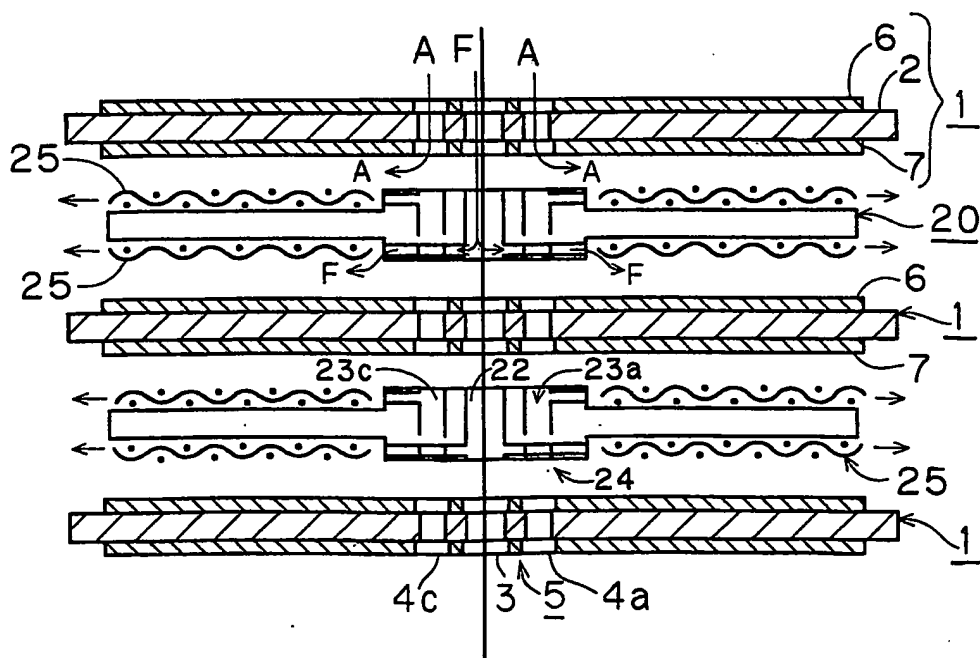


図5A

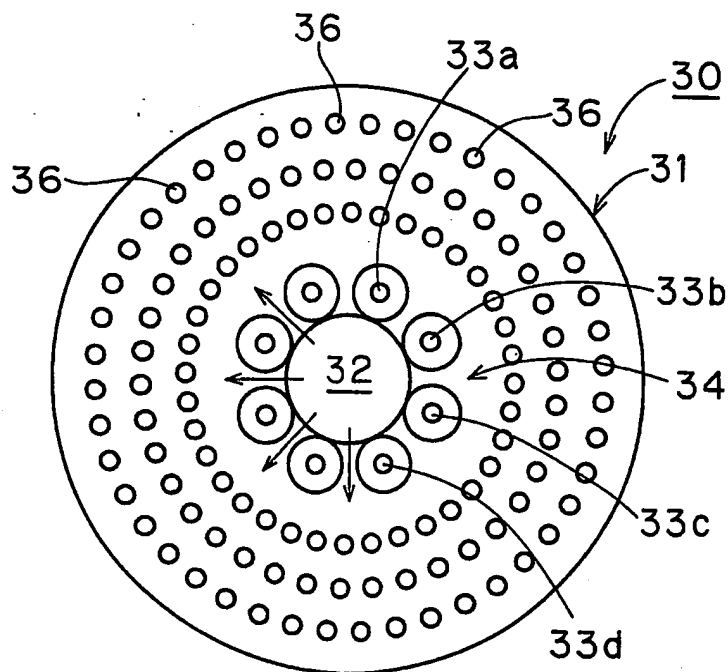


図5B

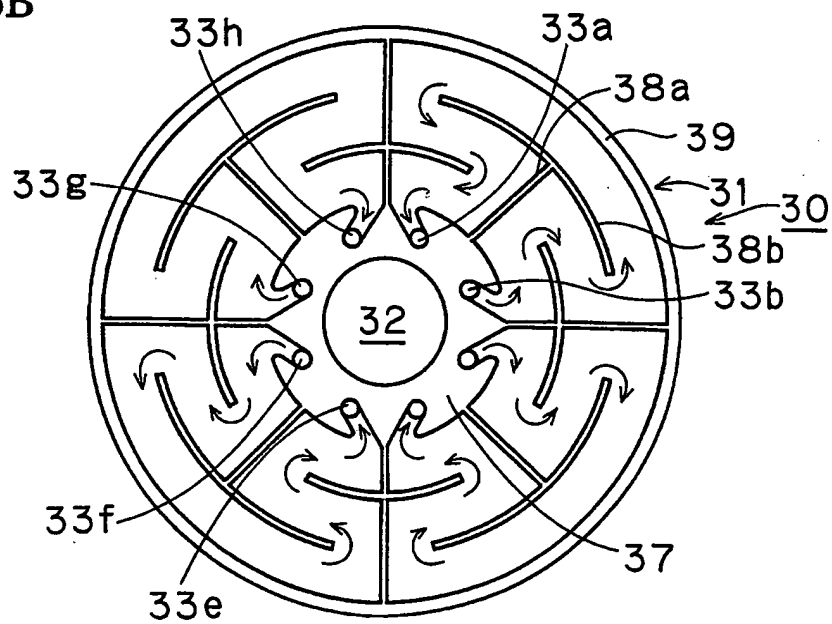


図6A

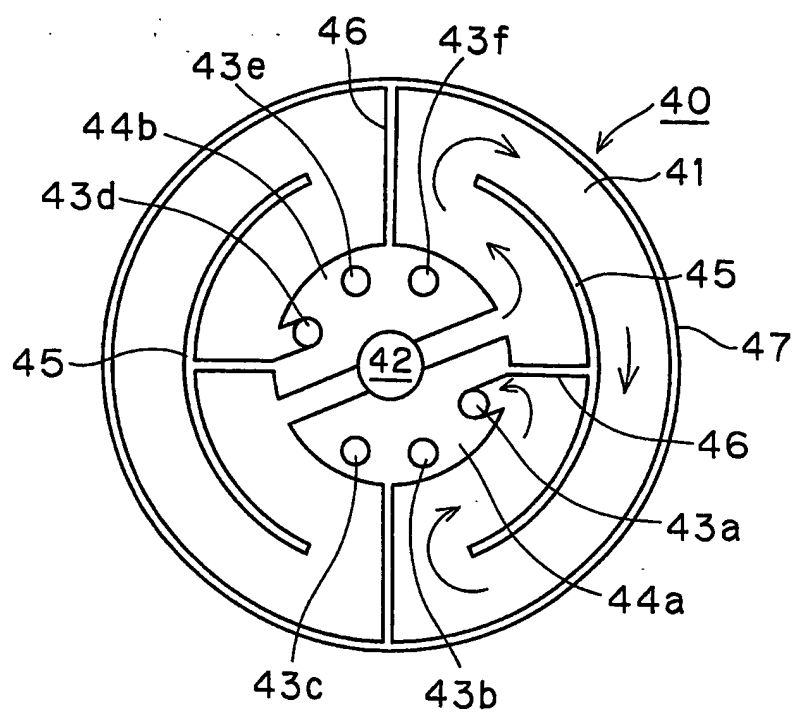


図6B

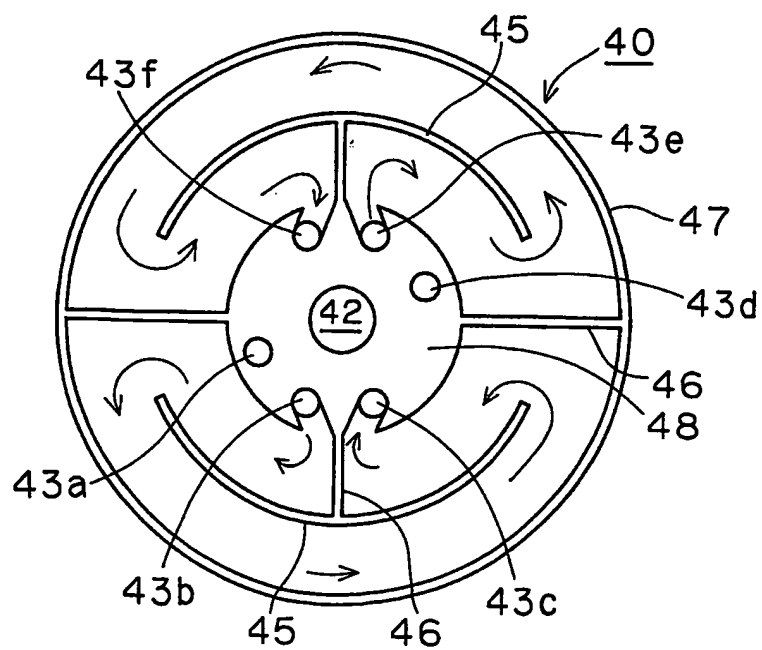


図7A

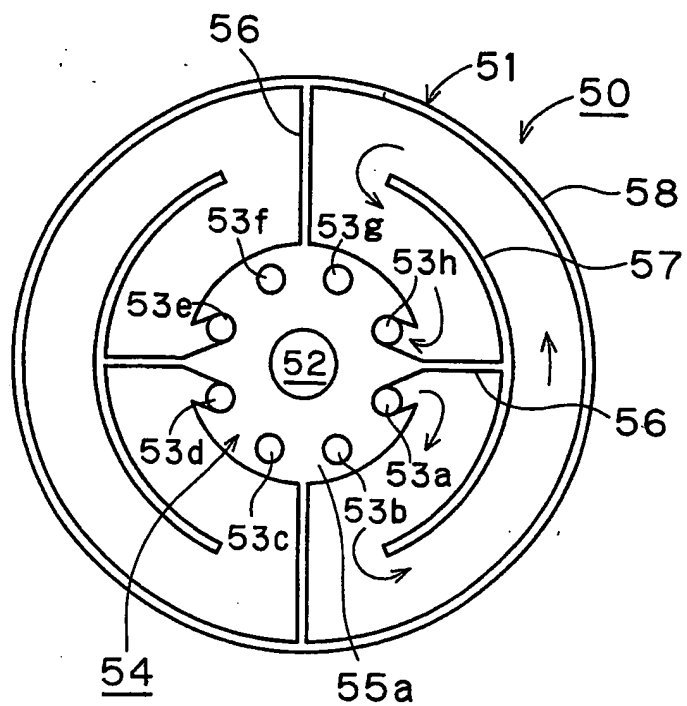


図7B

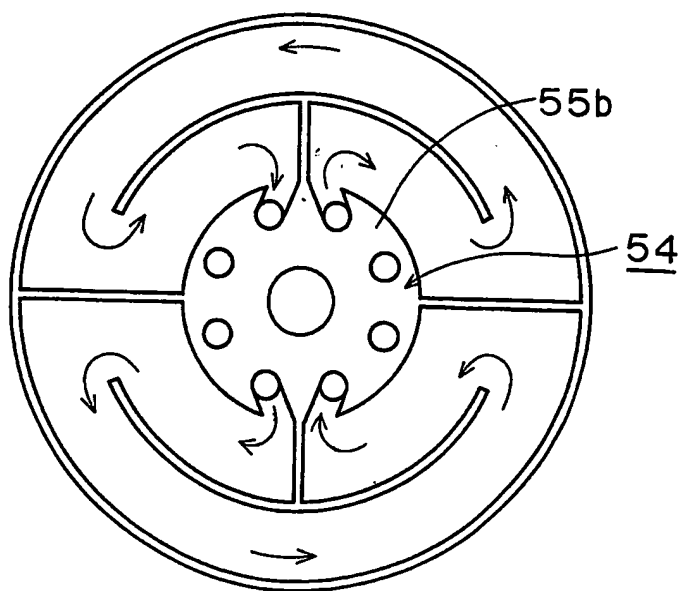
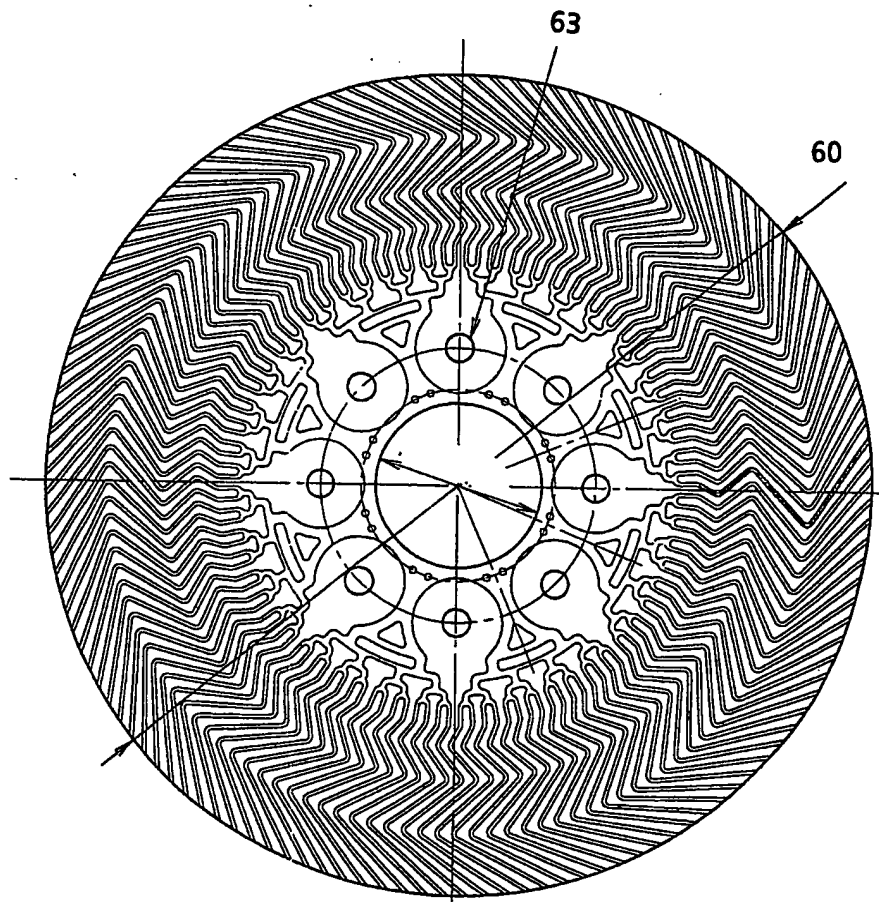


図8



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/07752

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H01M8/02, 8/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M8/00-8/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 98/29918 A1 (ZTEC CORP.), 09 July, 1998 (09.07.98), Description, page 9, line 22 to page 14, line 13; Figs. 3 to 5 & AU 9859042 A & TW 355852 A & NO 9903239 A & EP 956606 A1 & US 5948221 A & US 6024859 A & ZA 9711679 A & BR 9714125 A & CN 1249069 A & NZ 336604 A & NZ 508238 A & NZ 508239 A & JP 2001-507853 A & MX 9906155 A1	1-4, 8-13 5-7
P, A	JP 2002-8681 A (Sumitomo Precision Products Co., Ltd.), 11 January, 2002 (11.01.02), Claims; Fig. 6 (Family: none)	1-13

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
05 November, 2002 (05.11.02)Date of mailing of the international search report
19 November, 2002 (19.11.02)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H01M 8/02, 8/12

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H01M 8/00-8/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2002年
 日本国登録実用新案公報 1994-2002年
 日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	WO 98/29918 A1 (ZTEC CORP.) 1998. 07. 09 明細書第9頁第2行目～第14頁第13行目、及び図3～5参照 &AU 9859042 A &TW 355852 A &NO 9903239 A &EP 956606 A1 &US 5948221 A &US 6024859 A &ZA 9711679 A &BR 9714125 A &CN 1249069 A &NZ 336604 A &NZ 508238 A &NZ 508239 A &JP 2001-507853 A &MX 9906155 A1	1-4, 8-13 5-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05. 11. 02

国際調査報告の発送日

19.11.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森井 裕美

4 X 9737

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PA	JP 2002-8681 A (住友精密工業株式会社) 2002.01.11 特許請求の範囲及び図 6 参照 ファミリーなし	1-13